



PCT

特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(51) 国際特許分類 B29C 45/00, 45/26, 45/56 // B29K 23:00, 105:14	A1	(11) 国際公開番号 WO97/29896  (43) 国際公開日 1997年8月21日(21.08.97)
--	----	---

(21) 国際出願番号 PCT/JP97/00371

(22) 国際出願日 1997年2月13日(13.02.97)

(30) 優先権データ

特願平8/28841	1996年2月16日(16.02.96)	JP
特願平8/259349	1996年9月30日(30.09.96)	JP
特願平8/277920	1996年10月21日(21.10.96)	JP
特願平8/282215	1996年10月24日(24.10.96)	JP

(71) 出願人 (米国を除くすべての指定国について)  
出光石油化学株式会社

(IDEMITSU PETROCHEMICAL CO., LTD.)(JP/JP)  
〒108 東京都港区芝五丁目6番1号 Tokyo, (JP)

(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ)

野村 学(NOMURA, Manabu)(JP/JP)

山崎康宣(YAMAZAKI, Yasunobu)(JP/JP)

阿部知和(ABE, Tomokazu)(JP/JP)

和田 薫(WADA, Kaoru)(JP/JP)

田中隆義(TANAKA, Takayoshi)(JP/JP)

〒299-01 千葉県市原市姉崎海岸1番地1

出光石油化学株式会社内 Chiba, (JP)

(74) 代理人

弁理士 東平正道(TOHEI, Masamichi)

〒299-01 千葉県市原市姉崎海岸24番地4

出光興産株式会社内 Chiba, (JP)

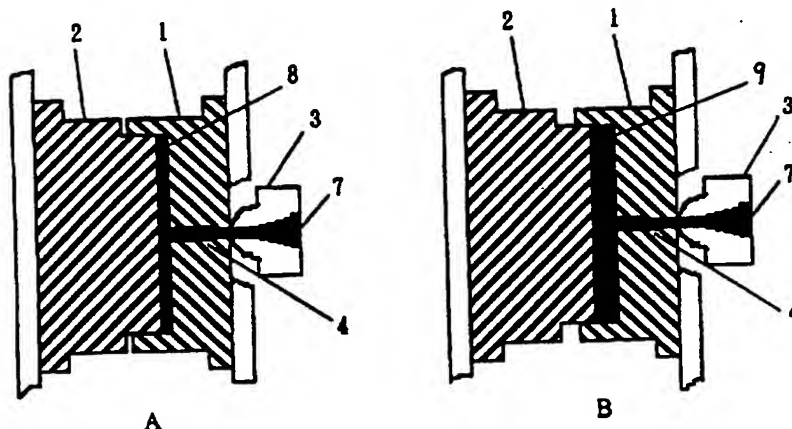
(81) 指定国 CA, CN, KR, US, 欧州特許 (AT, BE, CH, DE,  
DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).

添付公開書類

国際調査報告書

(54)Title: A METHOD OF FORMING A LIGHT-WEIGHT, FIBER-REINFORCED THERMOPLASTIC RESIN PRODUCT AND A LIGHT-WEIGHT MOLDED PRODUCT

(54)発明の名称 繊維強化熱可塑性樹脂軽量成形品の製造法及び軽量成形品



(57) Abstract

The method of forming a light-weight, fiber-reinforced, particularly glass fiber-reinforced-thermoplastic resin product includes the steps of melting and mixing thermoplastic resin pellets containing parallelly oriented fibers 2-100 mm long, injecting the melted resin into a cavity which is closed so that its volume is smaller than that of the final molded product, and, before or after the resin injection is completed, opening the cavity until its volume is equal to that of the final molded product. Unlike the conventional injection-molded products, this product does not require a foaming agent and, if it uses any, requires only a small amount of foaming agent. The product thus formed is light in weight and has fibers uniformly entangled inside, providing an excellent appearance of the surface. Further a skin layer is formed over the surface. These features combined with the reinforcement by the glass fibers offer high strength and high stiffness.

(57) 要約

本発明による繊維強化、特にガラス繊維経軽量熱可塑性樹脂軽量成形品の製造法は、繊維が互いに平行に配列しており、長さが2～100mmの繊維含有熱可塑性樹脂ペレットを溶融混練市、最終成形品に相当する金型容積よりも小さくなるように閉じた金型（キャビティ）中に射出し、樹脂の射出完了前若しくは完了後に金型を最終成形品の容積まで開くものである。従来の射出成形とことなり発泡剤を特に必要とせず、用いるとしても少量ですみ、得られた成形体は、軽量であるとともに、内部は繊維が均一に絡み合っており、表面状態等の外観に優れ、しかも表面にスキン層が形成されるため、ガラス繊維の補強と相まって高強度、高剛性である。

情報としての用途のみ

PCTに基づいて公開される国際出願をパンフレット第一頁にPCT加盟国を特定するために使用されるコード

AL	アルバニア	EE	エストニア	LR	リベリア	RU	ロシア連邦
AM	アルメニア	ES	スペイン	LS	レソト	RD	ロンドン
AT	オーストリア	FI	フィンランド	LT	リトアニア	SE	スウェーデン
AU	オーストラリア	FR	フランス	LU	ルクセンブルグ	SG	シンガポール
AZ	アゼルバイジャン	GB	ガボン	LV	ラトヴィア	SI	スロベニア
BB	バルバドス	GE	イギリス	MC	モナコ	SK	スロバキア共和国
BF	ブルキナ・ファソ	GH	グナ	MD	モルドバ	SN	セネガル
BG	ブルガリア	GR	ギリシャ	MG	マダガスカル	SZ	スワジランド
BR	ブラジル	GN	ギニア	MK	マケドニア	TD	チャド
BS	バハマ	HU	ハンガリー	VI	ヴィエトナム	TG	トーゴ
BT	ブータン	IE	アイルランド	ML	マリ	TJ	タジキスタン
CA	カナダ	IS	アイスランド	MN	モンゴル	TM	トルクメニスタン
CC	中央アフリカ共和国	IT	イタリア	MR	モリタニア	TR	トルコ
CF	コンゴ	JP	日本	MW	モザンビーク	TT	トリニダード・トバゴ
CG	コンゴ	KE	ケニア	MX	メキシコ	UA	ウクライナ
CH	スイス	KG	キルギスタン	NE	ニジェール	UG	ウガンダ
CI	コート・ジボアール	KP	朝鮮民主主義人民共和国	NL	オランダ	US	米国
CM	カメルーン	KR	大韓民国	NZ	ニュージーランド	UZ	ウズベキスタン共和国
CN	中国	KZ	カザフスタン	PT	ポルトガル	VN	ベトナム
CO	コロンビア	LI	リヒテンシュタイン	RO	ルーマニア	YU	ユーゴスラビア
CZ	チェコ共和国	LK	スリランカ				
DE	ドイツ						
DK	デンマーク						

## 明 細 書

繊維強化熱可塑性樹脂軽量成形品の製造法及び軽量成形品

### 技術分野

本発明は、繊維強化熱可塑性樹脂軽量成形品の製造法及び軽量成形品に関し、特に特定の繊維強化熱可塑性樹脂ペレット又は特定の繊維強化熱可塑性樹脂ペレット及び少量の発泡剤を用いた射出成形により、軽量で、良好な表面状態を有し、高強度、高剛性である繊維、特にガラス繊維強化熱可塑性樹脂軽量成形品の製造法及び軽量成形品に関するものである。

### 背景技術

ガラス繊維強化樹脂は、引張強度、剛性、耐熱性などが高いため、重要な素材として使用されている。中でも、易成形性のため、射出成形した製品がその中心を占めている。しかし、ガラス繊維の配合量の増大によって成形品の比重が高くなること、成形中のガラス繊維の切断により強度が低下するという欠点を有していた。また、異方性のため、反り変形が大きいという欠点も有していた。そこで、これらの欠点を改良する方法として、2～100mmのペレット長さに等しく且つ平行に配列したガラス繊維で強化した樹脂ペレットを用いる方法などが提案されている（例えば、特公昭63-37694号公報，特開平3-188131号公報など）。また、10～100mmの長さの平行繊維強化熱可塑性樹脂ペレットを成形して長さ5～100mmの強化繊維が絡み合った位置関係にある繊維強化熱可塑性樹脂成形体の製造法も提案されている（特開平6-198753号公報）。しかし、これらの方法でもガラス繊維の配合によって重量が重くなるという問題が残されている。

一方、ガラス繊維強化樹脂成形体の軽量化方法としては、発泡剤を

用いた発泡射出成形方法が知られている（特開平 7 - 2 4 7 6 7 9 号公報）。しかしながらこの場合、かなりの発泡剤を必要とすると共に、発泡倍率を 2 ～ 5 倍にすることは容易ではなく、またガラス繊維含有量にもおのずと限界があるのが現状である。また、別の成形方法として、予め金型を開いた金型キャビテーに発泡剤含有樹脂を射出し、その後に金型を閉じること（インジェクションプレス）により発泡成形品を製造することも考えられる。しかし、この場合においても、発泡剤を多く用いて高発泡倍率の成形品を得ようとする、成形品表面にガスが走り、シルバーマークが発生する不良現象と共に、成形品の強度、剛性の点でも問題が多く実用化までには至っていないのが現状である。

さらに、強化材繊維と熱可塑性樹脂との混合物を可塑化し、圧縮成形を行う際に、繊維の復元膨張を望む成形品表面の一部の圧縮を開放させ、表面層に繊維が起毛した状態、及び／若しくは成形品内に部分的に空隙状態を形成し吸音部を設ける繊維強化樹脂成形品の成形方法が知られている。（WO 96 / 2 5 2 8 0）。しかし、この成形方法では、表面状態が起毛である特殊なものであり、表面平滑な成形品は得られない。また、圧縮成形のため生産性が低く、又原料が混合物の場合均一性が不十分であり、均一性を高めるとガラス繊維の破損が激しくなるためその成形品の用途分野は制限される。

#### 発明の開示

本発明者らは、軽量化と強度を満足する繊維強化熱可塑性樹脂軽量成形品を射出成形によって得るべく、鋭意検討した結果、特定の成形原料と成形法の組み合わせにより、上記目的が達成されるのみならず、外観（表面特性：平滑スキン）にも優れた軽量成形品が得られることを見出した。本発明はかかる知見に基づいて完成したものである。

すなわち、本発明は、表面に空隙を有さないスキン層を有し、内部は大きな中空部がなく、均一性に優れ、繊維が絡んだ連続的な空隙を有する比曲げ強度等に優れた軽量成形品を提供するものであり、以下を要旨とするものである。

(1) 繊維含有量が20～80重量%で、繊維が互いに平行に配列しており長さが2～100mmの繊維含有熱可塑性樹脂ペレット(A)、又は前記繊維含有熱可塑性樹脂ペレット(A)及び該(A)以外の熱可塑性樹脂からなり前記繊維含有熱可塑性樹脂ペレット(A)中の繊維含有量が全体の5～80重量%となるような混合物からなる成形原料を熔融混練し、最終的に得られる成形品に相当する金型容積よりも小さくなるように閉じた金型キャビティ中に熔融樹脂を射出し、樹脂の射出完了前若しくは完了後に金型を最終成形品の容積まで開くことを特徴とする繊維強化熱可塑性樹脂軽量成形品の製造法。

(2) 繊維がガラス繊維であり、その含有量が20～80重量%である上記(1)記載の繊維強化熱可塑性樹脂軽量成形品の製造法。

(3) 繊維が有機繊維であり、その含有量が5～80重量%である上記(1)記載の繊維強化熱可塑性樹脂軽量成形品の製造法。

(4) 繊維が炭素繊維であり、その含有量が5～80重量%である上記(1)記載の繊維強化熱可塑性樹脂軽量成形品の製造法。

(5) 上記(1)に記載の成形原料100重量部に対し、発泡剤を.01～5重量部配合したものを射出成形に供することを特徴とする上記(1)に記載の繊維強化熱可塑性樹脂軽量成形品の製造法。

(6) 熱可塑性樹脂が不飽和カルボン酸またはその誘導体で変性されたポリオレフィンを含有してもよいポリオレフィン系樹脂である上記(1)～(5)のいずれかに記載の繊維強化熱可塑性樹脂軽量成形品の製造法。

(7) 樹脂の射出完了前若しくは完了後に金型を最終成形品の容積まで開く成形方法において、成形品の端部形成部分を除いた部分を開く上記(1)に記載の繊維強化熱可塑性樹脂軽量成形品の製造法。

(8) 最終的に得られる成形品に相当する容積よりも小さくなるように閉じた金型キャビティ中に溶融樹脂を射出し、樹脂の射出完了前若しくは完了後に金型を最終成形品の容積まで開く方法において、樹脂の射出を初期金型キャビティの容積相当分より小さくして樹脂の射出の完了前若しくは完了後に一旦、可動型部を前進させて溶融樹脂をキャビテに充填させ、ついで最終成形品の容積まで開くことを特徴とする上記(1)に記載の繊維強化熱可塑性樹脂軽量成形品の製造法。

(9) 繊維の重量平均繊維長が1～20 mm、含有量が20～80重量%で、空隙率が10～80%であり表面に空隙を持たないスキン層を有することを特徴とする繊維強化熱可塑性樹脂軽量成形品。

(10) 曲げの比強度が80 MPa以上である上記(9)記載の繊維強化熱可塑性樹脂軽量成形品。

(11) 繊維強化熱可塑性樹脂軽量成形品が、自動車部材、家電部品、家具、建築材料のいずれかである上記(9)又は(10)記載の繊維強化熱可塑性樹脂軽量成形品。

#### 図面の簡単な説明

図1は繊維強化熱可塑性樹脂軽量成形品を製造する射出成形の金型部の説明図(断面)である。

図2は繊維強化熱可塑性樹脂軽量成形品を製造する射出成形の金型部の他の例の説明図(断面)である。

それぞれの図において、(A)は、樹脂の射出時を示し、(B)は金型を開いて成形した最終成形品の状態を示す。

### 発明を実施するための最良の形態

以下に、本発明の実施の形態を説明する。

本発明の繊維強化熱可塑性樹脂軽量成形品の製造法は、上記のような特定の繊維含有熱可塑性樹脂ペレット（A）を成形原料の一成分として用いることにより達成される。ここで用いられる熱可塑性樹脂については特に制限はなく、例えばポリオレフィン系樹脂，ポリスチレン系樹脂，ポリ塩化ビニル系樹脂，ポリアミド系樹脂，ポリエステル系樹脂，ポリアセタール系樹脂，ポリカーボネート系樹脂，ポリ芳香族エーテル又はチオエーテル系樹脂，ポリ芳香族エステル系樹脂，ポリスルホン系樹脂，アクリレート系樹脂などが挙げられる。

ここでポリオレフィン系樹脂としては、例えば、エチレン；プロピレン；ブテンー1；3－メチルブテンー1；3－メチルペンテンー1；4－メチルペンテンー1などの $\alpha$ －オレフィンの単独重合体やこれらの共重合体、あるいはこれらと他の共重合可能な不飽和単量体との共重合体などが挙げられる。代表例としては、高密度，中密度，低密度ポリエチレンや、直鎖状ポリエチレン，超高分子量ポリエチレン、エチレン－酢酸ビニル共重合体，エチレン－アクリル酸エチル共重合体などのポリエチレン系樹脂、シンジオタクチックポリプロピレン，アイソタクチックポリプロピレンや、プロピレン－エチレンブロック共重合体又はランダム共重合体などのポリプロピレン系樹脂、ポリ4－メチルペンテンー1などを挙げる事ができる。

また、スチレン系樹脂としては、例えば、スチレン， $\alpha$ －メチルスチレンなどの単独重合体やこれらの共重合体、あるいはこれらと共重合可能な不飽和単量体との共重合体が挙げられる。代表例としては、一般用ポリスチレン，耐衝撃用ポリスチレン，耐熱用ポリスチレン（ $\alpha$ －メチルスチレン重合体），シンジオタクチックポリスチレン，ア

クリロニトリル-ブタジエンスチレン共重合体 (ABS), アクリロニトリル-スチレン共重合体 (AS), アクリロニトリル-塩素化ポリエチレン-スチレン共重合体 (ACS), アクリロニトリル-エチレン-プロピレンゴム-スチレン共重合体 (AES), アクリルゴム-アクリロニトリル-スチレン共重合体 (AAS) などが挙げられる。

ポリ塩化ビニル系樹脂としては、例えば、塩化ビニル単独重合体や塩化ビニルと共重合可能な不飽和単量体との共重合体などが挙げられる。該共重合体としては、例えば塩化ビニル-アクリル酸エステル共重合体、塩化ビニル-メタクリル酸エステル共重合体、塩化ビニル-エチレン共重合体、塩化ビニル-プロピレン共重合体、塩化ビニル-酢酸ビニル共重合体、塩化ビニル-塩化ビニリデン共重合体などが挙げられる。さらに、これらのポリ塩化ビニル系樹脂を後塩素化して、塩素含量を高めたものを用いることができる。

ポリアミド系樹脂としては、例えば、6-ナイロンや12-ナイロンなど、環状脂肪族ラクタムを開環重合したもの、6, 6-ナイロン; 6, 10-ナイロン; 6, 12-ナイロンなど、脂肪族ジアミンと脂肪族ジカルボン酸とを縮重合させたもの、m-キシレンジアミンとアジピン酸との縮重合物など、芳香族ジアミンと脂肪族ジカルボン酸とを縮重合させたもの、p-フェニレンジアミンとテレフタル酸との縮重合物やm-フェニレンジアミンとイソフタル酸との縮重合物など、芳香族ジアミンと芳香族ジカルボン酸とを縮重合させたもの、11-ナイロンなど、アミノ酸を縮重合させたものなどを挙げる事ができる。

ポリエステル系樹脂としては、芳香族ジカルボン酸とアルキレングリコールとを縮重合させたものが挙げられ、具体例としては、ポリエ



チレンテレフタレートやポリブチレンテレフタレートなどがある。

ポリアセタール系樹脂としては、例えば、単独重合体のポリオキシメチレン及びトリオキサンとエチレンオキシドから得られるホルムアルデヒド-エチレンオキシド共重合体などが挙げられる。

ポリカーボネート系樹脂としては、4, 4'-ジヒドロキシジアリールアルカン系ポリカーボネート、特にビスフェノールAとホスゲンとを反応させるホスゲン法や、ビスフェノールAとジフェニルカーボネートなどの炭酸ジエステルとを反応させるエステル交換法などにより得られるビスフェノールA系ポリカーボネートが好ましく用いられる。また、ビスフェノールAの一部を2, 2-ビス(4-ヒドロキシ-3, 5-ジメチルフェニル)プロパンや2, 2-ビス(4-ヒドロキシ-3, 5-ジブromoフェニル)プロパンなどで置換した変性ビスフェノールA系ポリカーボネートや難燃化ビスフェノールA系ポリカーボネートなども用いることができる。

ポリ芳香族エーテル又はチオエーテル系樹脂は、分子鎖中にエーテル結合又はチオエーテル結合を有するもので、このような樹脂としては、例えば、ポリフェニレンエーテル、スチレンでグラフト化されたポリフェニレンエーテル、ポリエーテルエーテルケトン、ポリフェニレンサルファイドなどが挙げられる。

ポリ芳香族エステル系樹脂としては、例えば、p-ヒドロキシ安息香酸の縮重合で得られるポリオキシベンゾイル、ビスフェノールAとテレフタル酸やイソフタル酸などの芳香族ジカルボン酸との縮重合で得られるポリアリレートなどが挙げられる。

ポリスルホン系樹脂は、分子鎖中にスルホン基を有するもので、このようなものとしては、例えば、ビスフェノールAと4, 4'-ジクロロジフェニルスルホンとの縮重合で得られるポリスルホン、フェニ

レン基がエーテル基とスルホン基を介してp-位に連結された構造のポリエーテルスルホン、ジフェニレン基とジフェニレンエーテル基とがスルホン基を介して交互に連結した構造のポリアリールスルホンなどを挙げる事ができる。

アクリレート系樹脂としては、例えば、メタクリル酸エステル重合体やアクリル酸エステル重合体などが挙げられ、これらの単量体としては、メタクリル酸及びアクリル酸のメチル、エチル、n-プロピル、イソプロピル、ブチルエステルなどが用いられるが、工業的成形材料としてはメチルメタクリレート樹脂を代表的なものとして挙げる事ができる。

本発明においては、上記熱可塑性樹脂は単独で用いてもよく、二種以上を組み合わせ用いてもよい。また、上記の熱可塑性樹脂の中で、ポリプロピレン、プロピレンと他のオレフィンとのランダム共重合体、ブロック共重合体あるいはこれらの混合物などのポリプロピレン系樹脂が好ましく、特に、不飽和カルボン酸またはその誘導体で変性された酸変性ポリオレフィン系樹脂を含有するポリプロピレン系樹脂が好適である。

ここで、酸変性ポリオレフィン系樹脂に用いられるポリオレフィン系樹脂としては、例えばポリプロピレン、ポリエチレン、エチレン- $\alpha$ -オレフィン共重合体、プロピレン-エチレンランダム共重合体、プロピレン-エチレンブロック共重合体、エチレン- $\alpha$ -オレフィン共重合ゴム、エチレン- $\alpha$ -オレフィン-非共役ジエン系化合物共重合体（例えばEPDMなど）、エチレン-芳香族モノビニル化合物-共役ジエン系化合物共重合ゴムなどが挙げられる。また、上記 $\alpha$ -オレフィンとしては、例えばプロピレン；ブテン-1；ペンテン-1；ヘキセン-1；4-メチルペンテン-1などが挙げられ、これらは-

種用いてもよく、二種以上を組み合わせて用いてもよい。これらのポリオレフィン系樹脂の中では、共重合体を含むポリプロピレン系樹脂やポリエチレン系樹脂が好適であり、中でもポリプロピレン系樹脂が最も好ましい。

また、変性に用いられる不飽和カルボン酸またはその誘導体の具体例としては、アクリル酸、メタクリル酸、マレイン酸、フマル酸、イタコン酸、クロトン酸、シトラコン酸、ソルビン酸、メサコン酸、アンゲリカ酸などの不飽和カルボン酸類、無水マレイン酸、無水イタコン酸、無水シトラコン酸、アクリル酸メチル、メタクリル酸メチル、アクリル酸エチル、アクリル酸ブチル、マレイン酸モノエチルエステル、アクリルアミド、マレイン酸モノアミド、マレイミド、N-ブチルマレイミド、アクリル酸ナトリウム、メタクリル酸ナトリウムなどの酸無水物、エステル、アミド、イミド、金属塩などを挙げることができる。これらの中で不飽和ジカルボン酸及びその誘導体が好ましく、特に無水マレイン酸が好適である。

これらの不飽和カルボン酸やその誘導体は、前記ポリオレフィン系樹脂を変性する場合、一種用いてもよく、二種以上を組み合わせて用いてもよい。また変性方法については特に制限はなく、従来公知の種々の方法を用いることができる。例えば該ポリオレフィン系樹脂を適当な有機溶媒に溶解し、不飽和カルボン酸やその誘導体及びラジカル発生剤を添加して攪拌、加熱する方法、あるいは前記各成分を押出機に供給して熔融混練を行う方法などを用いることができる。この変性ポリオレフィン系樹脂としては、前記不飽和カルボン酸やその誘導体の付加量が0.01～20重量%、好ましくは0.1～10重量%の範囲にあるものがよく、特に0.1～10重量%の無水マレイン酸付加変性ポリプロピレン系樹脂が好適である。

次に、本発明に用いる繊維は、特に制限はないがガラス繊維が望ましい。ガラス繊維以外の繊維としては、特に制限はなく、ボロン繊維、炭化ケイ素繊維、アルミナ繊維、チッ化ケイ素繊維、ジルコニア繊維、ケイ酸カルシウム繊維、ロックウール等のセラミック繊維；酸化マグネシウム繊維、マグネシウムオキシサルフェート繊維、水酸化マグネシウム繊維、石膏繊維等の無機繊維；銅繊維、黄銅繊維、鋼繊維、ステンレス繊維、アルミニウム繊維、アルミニウム合金繊維等の金属繊維；ポリエチレン繊維、ポリプロピレン繊維、アラミド繊維、ポリアリレート繊維等の有機繊維；炭素繊維等が挙げられる。好ましくは、ガラス繊維、有機繊維、炭素繊維、金属繊維であり、特にガラス繊維又はガラス繊維を主体とした繊維の併用が好ましい。これらの繊維は1種でもよく、2種以上を併用してもよい。

また、本発明に用いるガラス繊維等は、カップリング剤で表面処理されたものが好ましい。カップリング剤としては、いわゆるシラン系カップリング剤、チタン系カップリング剤として従来公知のものの中から任意のものを選択して用いることができる。このシラン系カップリング剤の具体例としては、トリエトキシシラン；ビニルトリス（ $\beta$ -メトキシエトキシ）シラン； $\gamma$ -メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン； $\gamma$ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン； $\beta$ -（1，1-エポキシシクロヘキシル）エチルトリメトキシシラン；N- $\beta$ -（アミノエチル）- $\gamma$ -アミノプロピルトリメトキシシラン；N- $\beta$ -（アミノエチル）- $\gamma$ -アミノプロピルメチルジメトキシシラン； $\gamma$ -アミノプロピルトリエトキシシラン；N-フェニル- $\gamma$ -アミノプロピルトリメトキシシラン； $\gamma$ -メルカプトプロピルトリメトキシシラン； $\gamma$ -クロロプロピルトリメトキシシラン； $\gamma$ -アミノプロピルトリメトキシシラン； $\gamma$ -アミノプロピル-トリリス（2-メト

キシエトキシ) シラン; N-メチル- $\gamma$ -アミノプロピルトリメトキシシラン; N-ビニルベンジル- $\gamma$ -アミノプロピルトリエトキシシラン; トリアミノプロピルトリメトキシシラン; 3-ウレイドプロピルトリメトキシシラン; 3-4, 5ジヒドロイミダゾールプロピルトリエトキシシラン; ヘキサメチルジシラザン; N, O-(ビストリメチルシリル) アミド; N, N-ビス(トリメチルシリル) ウレアなどが挙げられる。これらの中でも $\gamma$ -アミノプロピルトリエトキシシラン; N- $\beta$ -(アミノエチル)- $\gamma$ -アミノプロピルトリメトキシシラン;  $\gamma$ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン;  $\beta$ -(3, 4-エポキシシクロヘキシル) エチルトリメトキシシランなどのアミノシラン, エポキシシランが好ましい。特に前記のアミノ系シラン化合物を用いることが好ましい。

また、チタン系カップリング剤の具体例としては、イソプロピルトリイソステアロイルチタネート; イソプロピルトリドデシルベンゼンスルホニルチタネート; イソプロピルトリス(ジオクチルパイロホスフェート) チタネート; テトライソプロピルビス(ジオクチルホスファイト) チタネート; テトラオクチルビス(ジトリデシルホスファイト) チタネート; テトラ(1, 1-ジアリルオキシメチル-1-ブチル) ビス(ジトリデシル) ホスファイトチタネート; ビス(ジオクチルパイロホスフェート) オキシアセテートチタネート; ビス(ジオクチルパイロホスフェート) エチレンチタネート; イソプロピルトリオクタノイルチタネート; イソプロピルジメタクリルイソステアロイルチタネート; イソプロピルイソステアロイルジアクリルチタネート; イソプロピルトリ(ジオクチルホスフェート) チタネート; イソプロピルトリクミルフェニルチタネート; イソプロピルトリ(N-アミドエチル, アミノエチル) チタネート; ジクミルフェニルオキシアセテ

ートチタネート；ジイソステアロイルエチレンチタネートなどが挙げることができる。

このようなカップリング剤を用いてガラス繊維等の表面処理を行うには、通常の方法で行うことができ、特に制限はない。例えば、前記カップリング剤の有機溶媒溶液あるいは懸濁液をいわゆるサイジング剤としてガラス繊維に塗布するサイジング処理、乾式混合、スプレー法により行うことが望ましい。

また、前記のカップリング剤とともにガラス用フィルム形成性物質を併用することができる。このフィルム形成性物質には、特に制限はなく、例えばポリエステル系、ウレタン系、エポキシ系、アクリル系、酢酸ビニル系、イソシアネート系などの重合体が挙げられる。

本発明において用いる繊維として、軽量成形品の強度、弾性率（剛性）の点から好ましい繊維であるガラス繊維の場合を中心に説明する。ガラス繊維としては、E-ガラス、S-ガラス等があり、その平均繊維径が $20\text{ }\mu\text{m}$ 以下、好ましくは $1\sim17\text{ }\mu\text{m}$ 、特に好ましくは $3\sim14\text{ }\mu\text{m}$ のものである。 $1\text{ }\mu\text{m}$ 未満では、ペレット製造時の樹脂の濡れ、含侵が困難となり、 $20\text{ }\mu\text{m}$ を越える場合には溶融混練時の繊維の欠損が起こりやすくなる。また、その長さは、前記の熱可塑性樹脂、特にポリプロピレン系などのポリオレフィン樹脂を用い、引抜成形法などを用いてペレット化され、 $2\sim100\text{ mm}$ のペレット長と等しい長さのガラス繊維で強化された熱可塑性樹脂ペレットとして用いる。ペレット化する際にはガラス繊維を適当な集束剤を用いて、好ましくは $100\sim10000$ 本、より好ましくは $150\sim5000$ 本の範囲で集束した繊維束を用いるのが好ましい。

集束剤としては、例えば、ウレタン系、オレフィン系、アクリル系、ブタジエン系、エポキシ系などがあり、いずれも用いることができ

るが、これらの中でウレタン系、オレフィン系が好ましい。ウレタン系集束剤は、通常ジイソシアネート化合物と多価アルコールとの重付加反応により得られるポリイソシアネートを50重量%以上の割合で含有するものであって、油変性型、湿気硬化型、ブロック型などの一液タイプ、及び触媒硬化型、ポリオール硬化型などの二液タイプがあるが、いずれも用いることができる。また、ポリオレフィン系樹脂としては、不飽和カルボン酸またはその誘導体で変性された変性ポリオレフィン系樹脂を用いることができる。こうして集束されたガラス繊維束に熱可塑性樹脂を含浸させることによってガラス繊維含有熱可塑性樹脂ペレット(A)を製造することができる。ガラス繊維束に樹脂を付着、含浸させる方法としては、例えば、熔融樹脂に繊維束を浸漬して通す方法、コーティング用ダイに繊維束を通す方法、ダイを用いて繊維束の周りに熔融樹脂を押し出す方法などを採用することができる。繊維束中への熔融樹脂の含浸、濡れ性をさらに向上させるために、ダイ内に凹凸部を設け、張力下に熔融樹脂の付着した繊維束(ストランド)を引き抜き、さらに加圧ロールでプレスする工程を組み込む引抜成形法も採用することができる。なお、ガラス繊維への熱可塑性樹脂の含浸性、ペレットの製造性が満足されれば収束剤の使用は必ずしも必要としない。このようにして得られたストランド状の長繊維含有熱可塑性樹脂を冷却後、適切な長さのペレットに切断することにより、ガラス繊維が互いに平行に配列され、ガラス繊維長とペレット長とが等しいガラス繊維含有熱可塑性樹脂ペレット(A)を得ることができる。

本発明においては、2～100mmの長さのペレットに切断したものを用いる。これによりガラス繊維の長さはペレット長と等しい2～100mmとなる。繊維長が2mm未満では本発明の製造法を採用し

ても、成形品の軽量化の達成は困難であり、機械的強度なども充分でなく、反り変形も大きくなる場合があり、また、100mmを超えると射出成形が困難となるとともに、ガラス繊維の分散性、成形品の表面特性が低下する場合がある。ペレット長は成形品の軽量化、機械的強度、外観特性及び反り変形の面から3～80mmの範囲であるのが好ましく、分散性、外観、表面特性を考慮すると特に5～50mmの範囲であるのがさらに好ましい。

このペレットを製造する場合のポリプロピレン系樹脂は、メルトインデックス：MI（230℃、2.16kgf）が、10～1000g/10分、好ましくは30～600g/10分の範囲のものが、含侵性、成形性などの点で好ましい。また、ポリプロピレン系樹脂としては、重合条件によりMIを調整したもの、あるいは過酸化物を添加して溶融混練してMIが大きくなるように調整したものをを用いることができる。なお、前記ペレットとしては、ストランド状のものを切断したものに限らず、シート状、テープ状、バンド状に成形したものを繊維長さが実質的に2～100mmになるように切断したものであってもよい。

本発明の軽量成形品の製造法において、前記繊維含有熱可塑性樹脂ペレット（A）を単独で用いることもできるが、（A）以外の熱可塑性樹脂との混合物を用いることもできる。この場合において、前記ペレット（A）中の繊維の含有量が成形原料全体の5～80重量%、好ましくは20～80重量%となるようにすることが必要である。特に、ガラス繊維の場合は20～80重量%とすることが軽量成形品の成形のために必要となる。これらの繊維の含有量は、各種の繊維の種類、密度、繊維長などに適宜決定することになる。また（A）以外の熱可塑性樹脂としては、（A）に用いた樹脂と同じでも異なってもよく



特に制限はなく、市販されている一般グレードのペレット、粒状体、粉体などその形状には制限はないが、ペレットを用いることが好ましい。なお、(A)と同じ系の樹脂の場合であっても、分子量、熔融流動性等の異なった樹脂を用いることができる。

また、本発明の軽量成形品の製造法においては、成形原料にタルク、マイカ、炭酸カルシウム、ガラス繊維ミルドファイバー、炭素繊維、硫酸マグネシウム繊維、チタン酸カリウム繊維、酸化チタン繊維、有機繊維などの強化剤、充填剤、酸化防止剤、帯電防止剤、難燃剤、顔料、分散剤などを含有させることもできる。

本発明のガラス繊維強化軽量成形品の製造法は、上記配合物を成形原料として、通常、特定条件の射出成形により成形する。この場合成形原料中のガラス繊維は、繊維が互いに平行に配列したペレット中の繊維長が2～100mm、好ましくは3～80mmであり、ガラス繊維の含有量は、20～80重量%、好ましくは30～70重量%である。繊維長が2mm未満では軽量化が十分達成されがたく、100mmを越えると射出成形機への供給が困難となり、また供給された場合にあっては可塑化が不安定となり均一な成形品を製造することが困難である。また、長繊維の含有量が20重量%未満では、長繊維ペレットの製造において、ガラス等のフィラメントを連続的に引き出すことが困難な場合があり、また軽量化が十分達成されない場合がある。また、80重量%以上では、繊維束中への樹脂の含浸が十分行われず、成形品中に未解繊の繊維が残る場合がある。なお含有熱可塑性樹脂ペレット(A)としては、繊維長の異なるペレット、繊維含有量の異なるペレットを必要により混合して用いることもできる。

成形原料の熔融混練、射出法としては、成形機の加熱筒内に、成形原料を投入し、加熱熔融させた後、繊維等を分散させ、その後射出成

形機の先端に送り込み、プランジャー等で射出する方法、②加熱筒内に、成形原料を投入し、加熱溶融させた後、プランジャー等で射出成形機のスクリー部に送り込み、繊維等を分散させた後、射出する方法、③深溝で圧縮比の小さいスクリーを用い、且つシリンダー温度等を著しく高く保ち、繊維破断を防止しつつ射出成形機の先端部分に樹脂を送り込み、プランジャー等で射出成形する方法などがある。ここで、射出成形方法としては、一般の射出成形方法、射出圧縮成形方法、射出プレス成形方法を含むものである。

次に、図 1 及び図 2 を用いて説明する。

図 1. 図 2 において、1 : 固定金型、2 : 可動金型、3 : 射出ノズル、4 : スプルー、5 : 動作コア、6 : 前進・後退ユニット、7 : 溶融樹脂、8 : 初期キャビティ、9 : 最終キャビティ（成形品）である。なお、各図において、（A）は、樹脂の射出時であり、（B）は成形完了時を示す。

本発明の軽量成形品の第一の製造法は、図 1 に示すように、成形原料を溶融混練し、最終成形品の容積よりも小さくなるように閉じた金型（キャビティ）8 中に溶融樹脂を射出〔図 1（A）〕する。この際に金型表面の樹脂は冷却され、一般の射出成形品と同じ表面スキン層を形成する。次いで、射出完了前若しくは完了後に金型を目的とする最終成形品 9 の容積まで開く〔図 1（B）〕。この際に繊維の絡まりによって形成された膨張性の溶融状態にある樹脂が膨張し最終成形品に相当する容積まで膨張する。次いで、冷却され、移動金型 2 を開放して成形品を取り出す成形法により軽量の成形品を製造することができる。

この場合の最初の金型の閉じ具合、最終の金型の開き具合は、成形原料の繊維の含有量、繊維長さあるいは目的とする成形品の空隙率（

成形体の比重) などをもとに適宜設定することができる。また、金型を開くタイミングは金型の温度、成形品表面のスキン層の厚み、成形品の厚みなどを考慮して適宜決定すればよい。

次に第2の成形法を図2に基づいて説明する。

図2では、固定金型1、可動金型2及び可動金型の移動方向と同方向に独立に前進又は後退しうるように可動金型の内側に配設された動作コア5とからなり、キャビティ部が該固定金型、可動金型及び動作コアから形成され、動作コアを前進又は後退させることによりキャビティ部の容積を可変とし得る金型を用いて、最終の成形品における端部形成部を除いた部分を拡大(開く)することにより成形を行うものである。図2においては、前進・後退ユニット6(油圧による一組の斜面のスライド方式)により動作コア5を前進・後退させる場合を示す。即ち、閉じた金型中に溶融樹脂を射出し、樹脂の射出が完了し閉じた金型内へ樹脂が充満される直前、又は樹脂が充満し最終の成形品の端部を形成した後に、キャビティ部分が最終成形品に相等する状態になるように動作コアを後退させることにより成形を行うものである。また、閉じた金型中にキャビティ容積相当分よりも少ない溶融樹脂を射出し、樹脂の射出の完了前に又は完了と同時に、完了後に、金型内キャビティに樹脂が充満するように一旦可動型又は動作コアを前進させ、樹脂を充満させると同時に又は樹脂を充満させ、次いでキャビティ部分が最終成形品に相当する状態になるように可動型又は動作コア5を後退させてもよい。この方法による場合、低い射出圧力で樹脂の射出を行うことができるため、射出充填時に生じやすい繊維の折損や配向を効果的に防ぐことが可能になる。金型内に樹脂が充満するように一旦可動型又は動作コアを前進させるが、この場合の前進させる距離を、通常、0.1~50mmの範囲にするのがよい。特に、成形品表

面でのエアの巻き込みによるフローマーク等の外観不良発生防止の点から、0.1～10 mmの範囲が好ましく用いられる。前進させる速度は、通常、0.5～30 mm/秒の範囲から適宜選ばれる。

2図でいう成形品の端部とは、最終成形品において、動作コアの後退によって形成される部分以外の部分をさすのであるが、かかる端部を動作コアの後退に先立って形成させることにより、動作コアの後退を開始してもかかる端部の形状はすでに形成されており、動作コアの後退に何ら影響されることなく、端部外観が良好で金型形状に忠実な形状をもつ最終成形品を得ることが可能となる。動作コアを後退させる速度は、用いた樹脂等の成形原料或いは最終成形品の形状等によっても異なるが、通常、0.1～10 mm/秒の範囲で選ばれる。さらには、速度は必ずしも一定にする必要はなく、後退初期から徐々に速度を速めていってもよい。

また、動作コアの後退を目的とする最終成形品に相当する位置で停止させるのではなく、一旦最終成形品相当容積よりも大きい位置まで後退させ、しかる後に、最終成形品相当容積にまで動作コアを逆に前進させて圧縮するという方法を採用してもよい。なお、図2に示す前進・後退ユニット6は、図1の可動型と可動型の取付板との間に装着することもできる。

さらに、本発明の軽量成形品の製造法にあっては、成形金型の少なくとも一面に、全面または部分的に発泡材料、不織布などの繊維材料、印刷樹脂フィルムなどの表皮材料を予め装着して成形することもできる。

さらに、本発明の軽量成形品の製造法においては、前記繊維（ガラス）含有熱可塑性樹脂ペレット（A）又は、前記ガラス繊維含有熱可塑性樹脂ペレット（A）及び該（A）以外の熱可塑性樹脂からなる混

合物 100 重量部に対し、発泡剤を 0.01 ~ 5 重量部配合した配合物が成形原料として供される。発泡剤を配合しない場合、繊維含有量、成形品の比重によっては、金型を後退させ、キャビティを拡大したときに、キャビティ内が負圧状態になり、安定した膨張が行われず、成形品の表面にうねりが生じ平滑性がなくなったりする場合がある。この場合少量の発泡剤を配合しておくことにより、熱により分解して発生したガスの作用で、キャビティ内が負圧状態になるのを効果的に防ぐことが可能となる。好ましい発泡剤の量は、発泡剤の種類及び成形に供される原料樹脂や原料に含有されている繊維の種類又は量、成形温度などによっても異なるが、一般に、繊維量が 30 ~ 80 重量%の場合、成形に供される原料 100 重量部に対し 0.01 ~ 0.8 重量部であり、繊維量が 20 ~ 30 重量%の場合、同様に 0.05 ~ 1.5 重量部であり、繊維量が 10 ~ 20 重量%の場合、同様に 0.1 ~ 5 重量部である範囲から選ばれる。

発泡剤の種類は特に制限なく、熱により分解しガスが発生するものであることが必要である。具体的には、シュウ酸誘導体、アゾ化合物、ヒドラジン誘導体、セミカルバジド、アジ化合物、ニトロソ化合物、トリアゾール、尿素及びその関連化合物、亜硝酸塩、水素化物、炭酸塩及び重炭酸塩等が用いられる。

発泡剤の量が、0.01 重量部より少ない場合、十分な量のガスが発生せず、金型を後退させキャビティを拡大したときに、キャビティ内が負圧になるのを解消することができず、また膨張を助ける効果が小さい。5 重量部を超える場合、キャビティ内にガスが多くなりすぎ、成形品に空隙部の偏在等が生じたり、大きな中空部が発生したり、表面にガスの流れが生じたりして機械的強度が低下する恐れがある。

本発明の繊維強化軽量成形品の場合は、繊維含有量がガラス繊維の

場合 10～80 重量%、好ましくは 20～80 重量%、さらに好ましくは 20～70 重量%である。また有機繊維や炭素繊維の場合 5～80 4～45 重量%、好ましくは 10～70 重量%である。またその空隙率は 10～80 %、好ましくは 20～70 %である。10 %未満では軽量化の効果がなく、80 %を越えると空隙を有さないスキン層を確実に形成することが困難になるとともに、強度が十分でなくなる場合がある。なお、本発明における空隙率とは、軽量成形品中のガラス繊維等や樹脂などの占める容積を除いた容積の比率である。また、成形品中の重量平均繊維長は、1～20 mm、好ましくは 1.5～15 mm、より好ましくは 2.0～12 mmである。成形品中の繊維長が 1 mm未満では、溶融樹脂の膨張性が低く、空隙率を確保することが困難であり、また成形品の強度が十分でなく、20 mmを越えてもこれによる強度等への影響は少なく、逆に成形条件をマイルドにする必要があり、成形時間が長く、生産性が低下し実用的でない。また、本発明の軽量成形品は、曲げの比強度（曲げ強度／比重）が、80 MPa 以上、好ましくは 90 MPa 以上、より好ましくは 100 MPa 以上である。このような曲げの比強度は、スキン層の形成と特定長さのガラス繊維強化によって達成される。

本発明の製造法においては、各種軽量成形品の製造が可能である。本発明にかかる繊維、特にガラス繊維強化熱可塑性樹脂軽量成形品は、特に形状や大きさに制限はないが、好適には板状成形品、特に 30 mm以下の板状系の成形品、型物成形品が含まれる。具体的には、自動車部品（例えば、インパネコア、バンパービーム、ドアステップ、ルーフラック、リアクォーターパネル、エアクリーナーケース、サンシェードなど）、自動二輪車等搭載ヘルメット収納用ボックスのように軽量でかつ耐衝撃性、強度が要求されるところに用いられる各種箱

状物、家電部品、建築部材（例えば、コンクリートパネル（コンクリート型枠）、ケーブルトラフ、壁材、床材、ユニットバスの床材、ウォーターパンなど、家具（椅子、机、ベンチ）などが挙げられる。

本発明による繊維、特にガラス繊維、有機繊維、炭素繊維強化軽量熱可塑性樹脂軽量成形品の製造法は、従来の一般的な射出成形と比較して、比較的低い型締め条件で成形できるとともに、発泡剤を特に必要とせず、用いるとしても少量ですみ、得られた成形体は、軽量であるとともに、内部は繊維が均一に絡み合っており、表面状態等の外観に優れ、しかも表面にスキン層が形成されるため、ガラス繊維の補強と相まって高強度、高剛性である。また、成形品端面の外観良好な金型形状に忠実な最終成形品を得ることができる。

次に、実施例及び比較例により本発明をさらに詳細に説明するが、本発明はこれによって制限されるものではない。

なお、実施例及び比較例に使用するガラス繊維含有熱可塑性樹脂ペレット（長繊維ペレット）は下記の方法で調製したものである。

#### 〔製造例１〕

ダイスを押出機の先端に取り付け、含浸部に５本のロッドを直線状に配置（特開平３－１８３５３１、第２図に準じた装置）を用いる方法で製造した。

繊維束； $\gamma$ -アミノプロピルトリエトキシシランで表面処理された繊維径 $13\mu\text{m}$ のガラス繊維をウレタン系収束剤で１７０本束ねたガラスロービング

予熱温度； $200^{\circ}\text{C}$

熱可塑性樹脂； $230^{\circ}\text{C}$ 、 $2.16\text{kgf}$ のメルトインデックス（以下、単にMIと記す） $=60\text{g}/10\text{分の}1.0$ 重量％の無水マレイン酸含有変性ポリプロピレン

溶融温度；240℃

ロッド；5本、6mm（直径）×3mm（長さ）

傾斜角度；25度

上記条件下において、テンションロール間で繊維束の量を調製しつつガラスロービングをダイ内に送り込み含浸を行い、冷却後ペレタイザーでガラス繊維含有量が41重量%で、長さが20mmのガラス繊維含有ペレット（以下、長繊維ペレットA-1と記す）を製造した。

#### 〔製造例2〕

γ-アミノプロピルトリエトキシシランで処理された繊維径10μmの連続ガラス繊維を、ポリプロピレン系水性エマルジョン中に引き込み、樹脂を含浸させた後、乾燥させて、ガラス繊維含有量が97重量%のガラスロービングを製造した。〔ポリプロピレン系水性エマルジョン：無水マレイン酸含有量5重量%、極限粘度 $[\eta]$ ：0.20dl/gのポリプロピレン80重量部、水100重量部、非イオン系乳化剤20重量部および中和剤10重量部を、150℃まで昇温しながら攪拌し、エマルジョン化した。〕。得られたロービングを用いて、製造例1に準じてガラス繊維含有量69重量%、長さ12mmのガラス繊維含有ペレット（以下、長繊維ペレットA-2と記す）を製造した。

下記の実施例1～3及び比較例1～3において、成形品の評価及び成形品より切り出した試験片の試験は下記の方法で行った。

（a）成形品の評価：成形品を目視により評価

（b）曲げ強度、曲げ弾性率：JIS K-7203に準拠して測定した。

曲げの比強度＝曲げ強度／比重



曲げの比弾性率 = 曲げ弾性率 / 比重

(c) 成形品中の重量平均ガラス繊維長・・・成形品を灰化後、万能投影機にてガラス繊維を倍率 10 倍で写真撮影し、デジタイザーにて、約 3000 本を測定し、その平均値を求めた。

(d) 成形品の空隙率：成形品の組成比と比重より計算した。

〔実施例 1〕

長繊維ペレット A-1 を成形原料として、射出成形機（三菱重工業株式会社製：850MGW、出光圧縮ユニット装着）を用い、樹脂温度：280℃、金型（400mm×800mm×tmm厚みの平板）を用いた。予め金型開度が3mmの状態、3mm厚みに相当する容量の樹脂を射出した後、金型を最終成形品の6mmになるまで開き、冷却後、金型を開放し軽量成形品を得た。成形品の表面にはしっかりしたスキン層が形成され、シルバー等もなく、また内部には大きな中空がなく均一に膨張した良好な軽量成形品であった。成形品の空隙率、成形品中の重量平均ガラス繊維長、成形品の評価、比重、成形品の曲げの比強度、曲げの比弾性率の評価結果を表1に示した。

〔実施例 2〕

実施例 1 において、成形原料として、長繊維ペレット A-2：80 重量部、MI = 60 g / 10 分のポリプロピレン樹脂：20 重量部とのドライブレンド物を用い予め金型開度が2.5mmの状態、2.5mm厚みに相当する容量の樹脂を射出した後、金型を最終成形品の7.5mmになるまで開いた以外は実施例 1 に準じて軽量成形品を得た。成形品は、表面にしっかりしたスキン層が形成され、シルバー等のない良好な軽量成形品であった。成形品の評価結果を表1に示した。

〔実施例 3〕

実施例 1 において、成形原料として、長繊維ペレット A-2 : 50 重量部、MI = 30 g / 10 分のポリプロピレン樹脂 : 50 重量部とのドライブレンド物を用い予め金型を 3 mm になるように開いた状態で、3 mm 厚みに相当する容量の樹脂を射出した 2 秒後に、金型を最終成形品の 6.5 mm になるまで開き冷却し軽量成形品を得た。成形品は、表面にしっかりしたスキン層が形成され、シルバー等のない良好な軽量成形品であった。成形品の評価結果を表 1 に示した。

〔比較例 1〕

実施例 1 において、成形原料として、MI = 10 g / 10 分、ガラス繊維含有量 40 重量%、重量平均繊維長 0.45 mm の短繊維強化ペレットを用いた以外は実施例 1 に準じて成形品を得た。成形品は、表面にヒケが発生し、しかも空隙もなく軽量な成形品ではなかった。成形品の評価結果を表 1 に示した。

〔比較例 2〕

比較例 1 において、発泡剤マスターバッチペレット〔ポリスレン TS-182 (永和化成工業株式会社製) : 発泡剤含有量 = 30 重量%〕を、短繊維強化ペレット 100 重量部に対して、4 重量部加えた以外は、比較例 1 に準じて成形品を得た。空隙率 17% の軽量化は達成されたが、内部には大きな中空部が存在していたり、スキン層のない良好な成形品ではなかった。成形品の評価結果を表 1 に示した。

〔比較例 3〕

実施例 3 において、成形原料として、発泡剤マスターバッチペレット〔ポリスレン TS-182 (永和化成工業株式会社製) : 発泡剤含有量 = 30 重量%〕を、5 重量部加えたものを用い、一般的な射出成形方法により、金型厚み 3 mm に固定し、厚み 3 mm に相当する容量の樹脂を射出して成形品を得た。成形品の評価結果を表 1 に示した。

表 1

	成形品の 空隙率 (%)	成形品中の 重量平均繊維長 (mm)	成形品の評価				比 重	曲げの比強度 (MPa)	曲げの 比弾性率 (MPa)
			表面外観	スキン層	空隙分布状態	反り変形			
実施例-1	50	8.2	良好	あり	分布良好	なし	0.61	131	5870
実施例-2	67	5.1	良好	あり	分布良好	なし	0.47	142	6080
実施例-3	54	6.7	良好	あり	分布良好	なし	0.77	129	5420
比較例-1	0	0.39	ヒケが目立つ	-----	空隙なし	変形大	1.21	62	4530
比施例-2	17	0.41	シルバー発生	なし	表面まで発泡	変形小	1.02	34	2420
比施例-3	23	5.5	シルバー発生	なし	空隙小	変形小	0.91	86	4310

## 〔実施例 4〕

次に示す原料，装置，条件，操作等により行った。

## (1) 成形原料：

上記製造例 1 で得られた長繊維ペレット A-1：100 重量部に対し、発泡剤マスターバッチペレット〔ポリスレン EE-206（永和化成工業株式会社製）：発泡剤含有量＝20 重量％〕を 0.5 重量部配合したもの。

(2) 金型：キャビティ部が、縦 800 mm×横 400 mm（厚さは可変タイプ）の矩形板テスト型であって、可動金型の内側端面から 3 mm の位置に、可動金型の移動方向と同方向に独立に前進又は後退が可能な動作コアが配設されている。 第 2 図参照。

(3) 成形機：射出成形機（三菱重工業株式会社製、動作コアを前進・後退させるために出光圧縮ユニットが装着）

## (4) 成形条件

①成形温度（シリンダ温度）：260℃

②金型温度：50℃

③射出圧力：80 kg/cm<sup>2</sup> G

④射出速度：60%

⑤樹脂充填時間：3.2 秒

⑥保持圧力：30 kg/cm<sup>2</sup> G

⑦保持時間：3.0 秒

⑧冷却時間：120 秒

## (5) 成形操作

次に示す手順に従って行った。

①射出成形機において、可動金型を移動させ通常の射出成形と同じように、金型を閉じた。

②次に、キャビティ部における固定金型と動作コアとのクリアランスが4 mmになるよう動作コアを前進させ、保持した。

③射出ユニットより、熔融した成形原料を金型に射出し、初期キャビティ部に完全に充満させた。

④充填終了直後に、動作コアの後退を開始した。後退速度は、0.8 mm/秒とし、後退距離を8 mmとすることにより、最終成形品に相当するキャビティ部の厚みを12 mmとして後退を終了した。

⑤冷却時間経過後、可動金型を後退させて金型を開放して成形品を取り出した。

#### (6) 評価結果

①得られた成形品の表面は平滑で、且つ成形品の端面は金型形状に忠実であった。

②最終製品の肉厚は12 mmであり、肉厚は約3倍になっていた。

③最終製品の比重は、約0.4であった。

#### 〔比較例4〕

実施例4において、動作コアを初めから最終製品の状態のところまで後退させておき、肉厚が約12 mmになるように樹脂充填量を適正化してキャビティ内に充填した。

#### (1) 評価結果

①得られた成形品の表面は平滑で、且つ成形品の端面は金型形状に忠実であった。

②最終製品の肉厚は12 mmであった。

③最終製品の比重は約1.08であり、膨張はなく軽量化されたものは得られなかった。

#### 〔実施例5〕

下記の実施例及び比較例において、成形品の評価及び成形品より切

り出した試験片の試験は下記の方法で行った。

〔テスト用矩形板の評価〕

700 mm × 450 mm × 肉厚 t mm からなるテスト用矩形板について、以下に述べる評価を行った。

(a) 熱垂下性： テスト用矩形板の長手部を固定し、120℃のオーブンに24時間放置後取り出し、23℃で1時間放置した後、最も垂下の大きい部分の垂下量を測定した。

(b) 反り量： テスト用矩形板の長手部を固定し、固定部を基準に三次元の各方向の変位を測定し、その変位の内、最も大きな値を反り量とした。

(c) 衝撃強さ： テスト用矩形板の長手部を固定した後、1 kg の鉄球をある高さから落下させたとき、製品が破壊する高さを測定した。

(d) 曲げ弾性率： J I S K-7203 に準拠して測定した。

比曲げ弾性率 = 曲げ弾性率 / 比重

(e) 膨張状況： 製品を切断し、厚み方向から観察した。

(f) 成形品の空隙率： 成形品の組成比と比重より計算した。

〔実施例 5-1〕

MI = 60 のポリプロピレン（出光石油化学（株）製、商品名 J-6083H）をダイスの中に押し出す一方、ポリアリレート繊維（クラレ社製、商品名ベクトラン）のロービングをダイスに引き入れ、繊維束へ樹脂を含浸させた後、繊維を引き抜き、冷却後ペレットの長さが 12 mm になるように切断した。得られたペレット中の繊維量は 42 重量%であった。

このペレット 100 重量部に対し、発泡剤マスターバッチペレット〔ポリスレン EV-306G（永和化成工業株式会社製）：発泡剤含

有量＝30重量％〕を0.3重量部添加した後、射出成形機（三菱重工業株式会社製：850MGW、出光圧縮ユニット装着）にて、樹脂温度：200℃、金型温度：80℃で、テスト用矩形板用金型及び金型（サンシェードの製品型）を用いて射出成形した。予め金型開度が2mmの状態、2mm厚みに相当する容量の樹脂を射出し、射出が完了した3秒後、金型を最終成形品の6mmになるまで開き、冷却後、肉厚6mmの製品を得た。得られた矩形板およびサンシェードの製品の評価結果を表2に示した。

〔実施例5-2〕

実施例5-1において、ポリアリレート繊維の代わりにカーボン繊維（東レ社製、商品名トレカ）を用いた以外は同様にしてペレットを得た。ペレット中の繊維量は37重量％であった。予め金型開度が3mmの状態、3mm厚みに相当する容量の樹脂を射出し、射出が完了した1秒後、金型を最終成形品の6mmになるまで開き、冷却後、肉厚6mmの製品を得た以外は実施例5-1と同様にした。得られた製品の評価結果を表2に示した。

〔実施例5-3〕

実施例5-2において、予め金型開度が3mmの状態、3mm厚みに相当する容量の樹脂を射出し、射出が完了した3秒後、金型を最終成形品の9mmになるまで開き、冷却後、肉厚9mmの製品を得た以外は実施例5-2と同様にした。得られた製品の評価結果を表2に示した。

〔比較例5-1〕

二軸押出機を用い、ホッパー口よりMI＝60のポリプロピレン（出光石油化学（株）製、商品名J-6083H）を63重量％になるように供給し、樹脂が熔融した後、サイドフィード口より繊維長3m

mのカーボン繊維のチョップトストランドを37重量%にするよう供給し、押出混練することによりペレットを得た。得られたペレットに発泡剤は添加せずに、実施例4と同様に射出成形した。得られた製品の評価結果を表2に示した。

〔比較例5-2〕

比較例5-1で得られたペレット100重量部に発泡剤を2重量部添加した以外は実施例5と同様に射出成形した。得られた製品の評価結果を表2に示した。

〔実施例6〕

成形品の評価及び成形品より切り出した試験片の試験は下記の方法で行った。

①曲げ強度及び曲げ弾性率： J I S K-7203に準拠して求めた。

曲げの比強度＝曲げ強度／比重

曲げの比弾性率＝曲げ弾性率／比重

②成形品中の重量平均ガラス繊維長・・・成形品を灰化後、万能投影機にてガラス繊維を倍率10倍で写真撮影し、デジタイザーにて、約3000本を測定し、その平均値を求めた。

(1) 成形原料：実施例1の製造例で得られた長繊維ペレットA-1。

(2) 金型：キャビティ部が、縦800mm×横400mm（厚さは可変タイプ）の矩形板テスト型であって、可動金型の内側端面から3mmの位置に、可動金型の移動方向と同方向に独立に前進又は後退が可能な動作コアが配設されている。 図2参照。

(3) 成形機：射出成形機（三菱重工業株式会社製：850MGW-160）。動作金型を前進・後退可能な出光圧縮ユニットが装着されている。



表 2

	成形品の 空隙率 (%)	熱垂下 試験 (mm)	反り量 (mm)	衝撃強さ ( m)	比曲げ 弾性率 (MPa)	膨 張 状 況
実施例 5-1	67	0.5	0.1	2	6286	連続的に空隙を有し、内部まで繊維が絡んでいる。
実施例 5-2	50	0.2	0.4	2	19200	連続的に空隙を有し、内部まで繊維が絡んでいる。
実施例 5-3	67	0.1	0.2	2	24300	連続的に空隙を有し、内部まで繊維が絡んでいる。
比較例 5-1	0	1.2	5.3	0.8	11000	膨張が認められない（発泡していない）。
比較例 5-2	67	2.3	0.9	1.1	8430	コア部に大きな中空が存在し、繊維がない。

#### (4) 成形条件

- ①成形温度（シリンダ温度）： 260℃
- ②金型温度： 50℃
- ③射出圧力： 80 kg/cm<sup>2</sup> G
- ④射出速度： 60%
- ⑤樹脂充填時間： 3.2 秒
- ⑥保持圧力： 30 kg/cm<sup>2</sup> G
- ⑦保持時間： 3.0 秒
- ⑧冷却時間： 120 秒

#### (5) 成形操作

次に示す手順に従って行った。

①射出成形機において、可動金型を移動させ通常の射出成形と同じように、金型を閉じた。

②次に、キャビティ部における固定金型と動作コアとのクリアランスが4mmになるよう動作コアを前進させ、保持した。

③射出ユニットより、熔融した成形原料を金型に射出し、初期キャビティ部に完全に充填させ、保圧をかけた。

④保圧時間経過直後に、動作コアの後退を開始した。後退速度は、0.4mm/秒とし、後退距離を4mmとすることにより、最終キャビティ部の厚みを8mmとして後退を終了した。

⑤冷却時間経過後、可動金型を後退させて金型を開き成形品を取り出した。 評価結果を次に示す。

- ・成形品の空隙率： 50%
- ・成形品中のガラス繊維の重量平均繊維長： 8.2mm
- ・比重： 0.61
- ・曲げの比強度： 131MPa

- ・ 曲げの比弾性率 : 5 8 7 0 M P a
- ・ 肉圧の膨張率 : 2 倍
- ・ 外観 : 表面平滑。成形品の端部は金型形状を忠実に再現していた。図 1 の金型構造の場合は端部のコーナー部に欠肉部が発生する場合がある。

#### 産業上の利用可能性

本発明によれば、主としてガラス繊維で強化された樹脂軽量成形品を実質的に発泡剤を用いず射出成形により生産性高く製造することができる。しかも、原料として予め樹脂の含浸処理がなされているので、容易に均一な溶融混練ができ、しかも混練時の破損を低減できる。このため得られた軽量成形品は、表面に美しいスキン層が形成され内部に均一な繊維の絡みあいによる空隙が存在するため、軽量にも関わらず強度、剛性、硬度などに優れ、自動車、家具、建築材料などとしての幅広く利用可能である。

## 請求の範囲

1. 繊維含有量が20～80重量%で、繊維が互いに平行に配列しており長さが2～100mmの繊維含有熱可塑性樹脂ペレット(A)、又は前記繊維含有熱可塑性樹脂ペレット(A)及び該(A)以外の熱可塑性樹脂からなり前記繊維含有熱可塑性樹脂ペレット(A)中の繊維含有量が全体の5～80重量%となるような混合物からなる成形原料を溶融混練し、最終的に得られる成形品に相当する金型容積よりも小さくなるように閉じた金型キャビティ中に溶融樹脂を射出し、樹脂の射出完了前若しくは完了後に金型を最終成形品の容積まで開くことを特徴とする繊維強化熱可塑性樹脂軽量成形品の製造法。
2. 繊維がガラス繊維であり、その含有量が20～80重量%である請求項1記載の繊維強化熱可塑性樹脂軽量成形品の製造法。
3. 繊維が有機繊維であり、その含有量が5～80重量%である請求項1記載の繊維強化熱可塑性樹脂軽量成形品の製造法。
4. 繊維が炭素繊維であり、その含有量が5～80重量%である請求項1記載の繊維強化熱可塑性樹脂軽量成形品の製造法。
5. 請求項1に記載の成形原料100重量部に対し、発泡剤を0.01～5重量部配合したものを射出成形に供することを特徴とする請求項1に記載の繊維強化熱可塑性樹脂軽量成形品の製造法。
6. 熱可塑性樹脂が不飽和カルボン酸またはその誘導体で変性されたポリオレフィンを含有してもよいポリオレフィン系樹脂である請求項1～5のいずれかに記載の繊維強化熱可塑性樹脂軽量成形品の製造法。
7. 樹脂の射出完了前若しくは完了後に金型を最終成形品の容積まで開く成形方法において、成形品の端部形成部分を除いた部分を開く請求項1に記載の繊維強化熱可塑性樹脂軽量成形品の製造法。

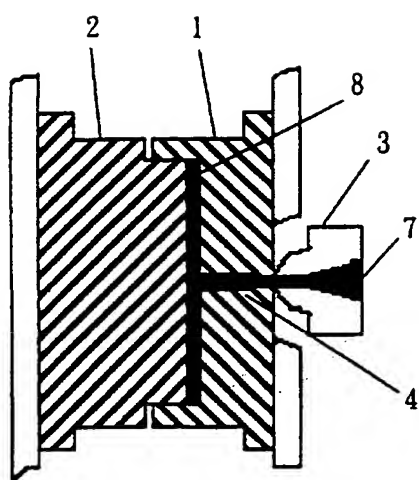
8. 最終的に得られる成形品に相当する金型容積よりも小さくなるように閉じた金型キャビティ中に溶融樹脂を射出し、樹脂の射出完了前若しくは完了後に金型を最終成形品の容積まで開く方法において、樹脂の射出を初期金型キャビティの容積相当分より少なくし、樹脂の射出の完了前若しくは完了後に一旦、可動型部を前進させて溶融樹脂をキャビティに充填させ、ついで最終成形品の容積まで開くことを特徴とする請求項 1 に記載の繊維強化熱可塑性樹脂軽量成形品の製造法。

9. 繊維の重量平均繊維長が 1 ～ 20 mm、含有量が 5 ～ 80 重量%で、空隙率が 10 ～ 80 % であり表面に空隙を持たないスキン層を有することを特徴とする繊維強化熱可塑性樹脂軽量成形品。

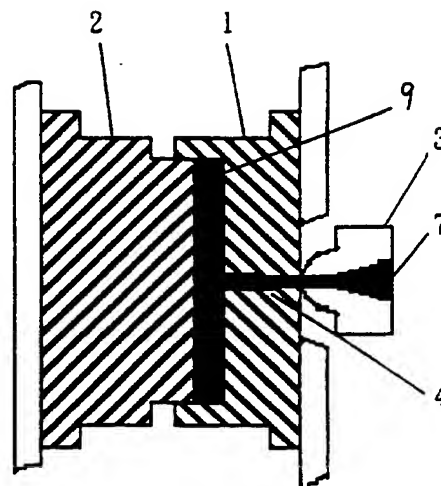
10. 曲げの比強度が 80 MPa 以上である請求項 9 記載の繊維強化熱可塑性樹脂軽量成形品。

11. 繊維強化熱可塑性樹脂軽量成形品が、自動車部材、家電部品、家具、建築材料のいずれかである請求項 9 又は 10 記載の繊維強化熱可塑性樹脂軽量成形品。

1

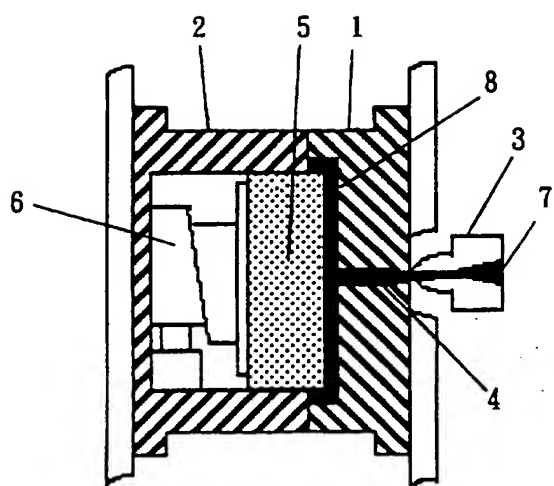


(A)

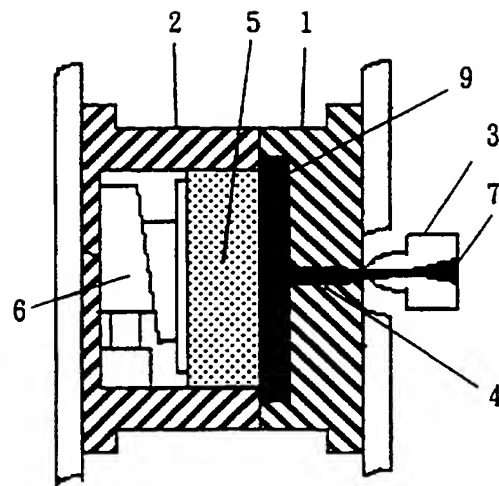


(B)

2



(A)



(B)

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP97/00371

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int. Cl<sup>6</sup> B29C45/00, B29C45/26, B29C45/56, B29K23:00, B29K105:14

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int. Cl<sup>6</sup> B29C45/00-45/84

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho 1926 - 1997

Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971 - 1995

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P	JP, 8-207074, A (Tohoku Pioneer K.K., Pioneer Electronic Corp.), August 13, 1996 (13. 08. 96)	1 - 11
A	JP, 7-247679, A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), September 26, 1995 (26. 09. 95)	1 - 11
A	JP, 3-188131, A (Imperial Chemical Industries PLC.), August 16, 1991 (16. 08. 91) & EP, B, 56703	1 - 11
A	Injection Molding 8th edition, supervised by Shoji Seto, K.K. Plastics Age October 1, 1978 (01. 10. 78), Page 339	1 - 11

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

## \* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&amp;" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

May 13, 1997 (13. 05. 97)

Date of mailing of the international search report

May 27, 1997 (27. 05. 97)

Name and mailing address of the ISA/

Japanese Patent Office

Facsimile No.

Authorized officer

Telephone No.

## 国際調査報告

国際出願番号 PCT/JP97/00371

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC)) IPC Cl <sup>6</sup> B29C45/00, B29C45/26, B29C45/56, B29K23:00, B29K105:14		
B. 調査を行った分野 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC)) IPC Cl <sup>6</sup> B29C45/00~45/84		
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの 日本国実用新案公報 1926-1997 日本国公開実用新案公報 1971-1995		
国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)		
C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
P	JP, 8-207074, A (東北パイオニア株式会社、パイオニア株式会社) 13 . 8月. 1996 (13. 08. 96)	1-11
A	JP, 7-247679, A (出光石油化学株式会社) 26. 9月. 1995 (2 6. 09. 95)	1-11
A	JP, 3-188131, A (インベリアル ケミカル インダストリーズ パブリ ック リミテッド カンパニー) 16. 8月. 1991 (16. 08. 91) & EP, B, 56703	1-11
A	瀬戸正二監修、射出成形 第8版 株式会社プラスチック・エージ 1. 10月. 1978 (01. 10. 78) 339頁	1-11
<input type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。		
* 引用文献のカテゴリー 「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの 「E」 先行文献ではあるが、国際出願日以後に公表されたもの 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す) 「O」 口頭による開示、使用、展示等に関する文献 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願日の後に公表された文献 「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの 「&」 同一パテントファミリー文献		
国際調査を完了した日 13. 05. 97		国際調査報告の発送日 27.05.1997
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/JP) 郵便番号100 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号		特許庁審査官 (権限のある職員) 川端 康之 印 電話番号 03-3581-1101 内線 3430